

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
1. Februar 2001 (01.02.2001)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
**WO 01/08452 A1**

(51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: **H05B 33/14**,  
H01L 33/00, C09K 11/80, 11/78

(21) Internationales Aktenzeichen: **PCT/DE00/02241**

(22) Internationales Anmeldedatum:  
8. Juli 2000 (08.07.2000)

(25) Einreichungssprache: **Deutsch**

(26) Veröffentlichungssprache: **Deutsch**

(30) Angaben zur Priorität:  
199 34 126.5 23. Juli 1999 (23.07.1999) DE  
199 51 790.8 27. Oktober 1999 (27.10.1999) DE  
199 63 791.1 30. Dezember 1999 (30.12.1999) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von  
US): **PATENT-TREUHAND-GESELLSCHAFT FÜR**

**ELEKTRISCHE GLÜHLAMPEN MBH [DE/DE];**  
Hellabrunner Strasse 1, D-81543 München (DE). **OS-**  
**RAM OPTO SEMICONDUCTORS GMBH CO. OHG**  
[DE/DE]; Wernerwerkstrasse 2, D-93049 Regensburg  
(DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): **KUMMER, Franz**  
[DE/DE]; Schleissheimer Strasse 121, D-80797 München  
(DE). **ZWASCHKA, Franz [DE/DE];** Egerländerstrasse,  
D-85737 Ismaning (DE). **ELLENS, Andries [DE/DE];**  
Hofangerstrasse 133, D-81735 München (DE). **DEBRAY,**  
**Alexandra [DE/DE];** Karlsbaderstrasse 22, D-92318  
Neumarkt (DE). **WAITL, Günther [DE/DE];** Praschweg  
3, D-93049 Regensburg (DE).

(74) Gemeinsamer Vertreter: **PATENT-TREUHAND-**  
**GESELLSCHAFT FÜR ELEKTRISCHE GLÜH-**  
**LAMPEN MBH; Postfach 22 16 34, D-80506 München**  
(DE).

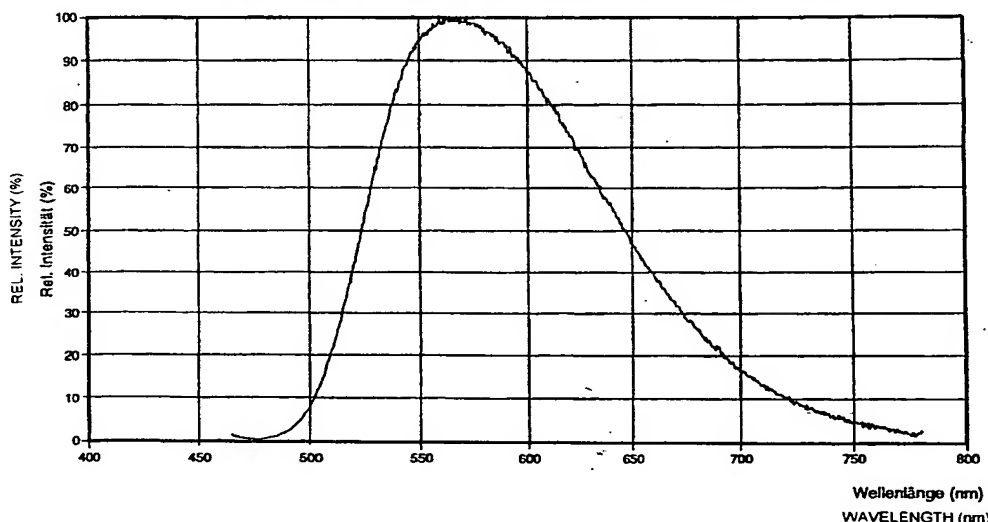
[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: **LUMINOUS SUBSTANCE FOR A LIGHT SOURCE AND LIGHT SOURCE ASSOCIATED THEREWITH**

(54) Bezeichnung: **LEUCHSTOFF FÜR LICHTQUELLEN UND ZUGEHÖRIGE LICHTQUELLE**

EMISSION SPECTRUM OF THE FLUORESCENT SUBSTANCE ACCORDING TO  
EMBODIMENT 1 AT AN EXCITATION WITH 430 nm

Emissionsspektrum des Leuchtstoffs nach Ausführungsbeispiel 1 bei Anregung mit 430 nm



(57) Abstract: A luminous substance for light sources, whereby the emission thereof is located within the spectral region and has a granitic structure  $A_3B_5O_{12}$ . Said substance is activated with Ce. The second constituent B represents at least one of the elements Al and Ga and the first constituent contains A terbium. Preferably, a garnet having the following structure  $(Tb_{1-x-y}SE_xCe_y)_3(Al, Ga)_5O_{12}$  is used, whereby  $SE=Y, Gd, La$  and/or  $Lu$ ;  $0 \leq x \leq 0,5$ ; and  $0 < y < 0,1$ .

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

BEST AVAILABLE COPY



(81) Bestimmungsstaaten (*national*): CA, CN, HU, JP, KR, US.

**Veröffentlicht:**

— Mit internationalem Recherchenbericht.

(84) Bestimmungsstaaten (*regional*): europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

(57) Zusammenfassung: Ein Leuchtstoff für Lichtquellen, deren Emission im kurzwelligen optischen Spektralbereich liegt, hat eine Granatstruktur  $A_3O_{12}$ . Er ist mit Ce aktiviert, wobei die zweite Komponente B mindestens eines der Elemente Al und Ga repräsentiert, und wobei die erste Komponente A Terbium enthält. Insbesondere wird ein Granat der Struktur  $(Tb_{1-x-y}SE_xCe_y)_3(Al, Ga)_5O_{12}$  verwendet, wobei  $SE=Y$ , Gd, La und/oder Lu;  $0 \leq x \leq 0,5-y$ ;  $0 < y < 0,1$  gilt.

## Leuchtstoff für Lichtquellen und zugehörige Lichtquelle

### Technisches Gebiet

Die Erfindung geht aus von einem Leuchtstoff für Lichtquellen und zugehörige Lichtquelle gemäß dem Oberbegriff des Anspruchs 1. Es handelt sich dabei insbesondere um einen gelb emittierenden Granat-Leuchtstoff für die Anregung durch eine Lichtquelle mit kurzen Wellenlängen im sichtbaren blauen Spektralbereich, 5 wodurch weißes Licht erzeugt wird. Als Lichtquelle eignet sich insbesondere eine Lampe (vor allem Leuchtstofflampe) oder eine LED (light emitting diode).

### Stand der Technik

Aus der WO 98/05078 ist bereits ein Leuchtstoff für Lichtquellen und zugehörige Lichtquelle bekannt. Als Leuchtstoff wird dort ein Granat der Struktur  $A_3B_5O_{12}$  eingesetzt, dessen Wirtsgitter als erste Komponente A aus mindestens einer der Seltenen 10 Erdmetalle Y, Lu, Sc, La, Gd oder Sm besteht. Weiter wird für die zweite Komponente B eines der Elemente Al, Ga oder In verwendet. Als Dotierstoff wird ausschließlich Ce eingesetzt.

Aus der WO 97/50132 ist ein sehr ähnlicher Leuchtstoff bekannt. Als Dotierstoff wird dort entweder Ce oder Tb eingesetzt. Während Ce im gelben Spektralbereich emittiert, liegt die Emission des Tb im grünen Spektralbereich. In beiden Fällen wird das 15 Prinzip der Komplementärfarbe (blau emittierende Lichtquelle und gelb emittierender Leuchtstoff) zur Erzielung einer weißen Lichtfarbe verwendet.

Schließlich ist in EP-A 124 175 eine Leuchtstofflampe beschrieben, die neben einer Quecksilberfüllung mehrere Leuchtstoffe enthält. Diese werden durch die UV- 20 Strahlung (254 nm) oder auch durch die kurzwellige Strahlung bei 460 nm angeregt. Drei Leuchtstoffe sind so gewählt, daß sie sich zu weiß addieren (Farbmischung).

### Darstellung der Erfindung

Es ist Aufgabe der vorliegenden Erfindung, einen Leuchtstoff gemäß dem Oberbegriff des Anspruchs 1 bereitzustellen, der beständig gegen hohe thermische Belastung ist und sich gut für die Anregung im kurzwelligen sichtbaren Spektralbereich eignet.

- 5 Diese Aufgabe wird durch die kennzeichnenden Merkmale des Anspruchs 1 gelöst. Besonders vorteilhafte Ausgestaltungen finden sich in den abhängigen Ansprüchen.

Erfindungsgemäß wird ein Leuchtstoff für Lichtquellen, deren Emission im kurzwelligen optischen Spektralbereich liegt, verwendet, der eine Granatstruktur  $A_3B_5O_{12}$  besitzt und der mit Ce dotiert ist, wobei die zweite Komponente B mindestens eines  
 10 der Elemente Al und Ga repräsentiert, wobei die erste Komponente A Terbium enthält. Überraschenderweise hat sich herausgestellt, daß sich Terbium (Tb) unter besonderen Umständen, nämlich bei blauer Anregung im Bereich 420 bis 490 nm, als Bestandteil des Wirtsgitters (erste Komponente des Granats) für einen gelb emittierenden Leuchtstoff eignet, dessen Aktivator Cer ist. Bisher wurde Tb in diesem Zusammenhang lediglich als Aktivator oder Koaktivator neben Cer für die Emission im  
 15 Grünen in Betracht gezogen, wenn die Anregung durch Kathodenstrahlen (Elektronen) oder kurzwellige UV-Photonen erfolgt (GB-A 1 600 492 und EP-A 208 713).

Dabei kann Terbium als Hauptbestandteil der ersten Komponente A des Granats in Alleinstellung oder zusammen mit mindestens einer der Seltenerdmetalle Y, Gd, La  
 20 u/o Lu verwendet werden.

Als zweite Komponente wird mindestens eines der Elemente Al oder Ga verwendet. Die zweite Komponente B kann zusätzlich In enthalten. Der Aktivator ist Cer.

In einer besonders bevorzugten Ausführungsform wird ein Granat der Struktur

$(Tb_{1-x-y}SE_xCe_y)_3(Al,Ga)_5O_{12}$  verwendet, wobei

- 25 SE = Y, Gd, La und/oder Lu;

$0 \leq x \leq 0,5 - y$ ;

$0 < y < 0,1$  gilt.

Der Leuchtstoff absorbiert im Bereich 420 bis 490 nm und kann so durch die Strahlung einer blauen Lichtquelle, die insbesondere die Strahlungsquelle für eine Lampe oder LED ist, angeregt werden. Gute Ergebnisse wurden mit einer blauen LED erzielt, deren Emissionsmaximum bei 430 bis 470 nm lag. Das Maximum der Emission des Tb-Granat:Ce-Leuchtstoffs liegt bei etwa 550 nm.

Dieser Leuchtstoff eignet sich besonders für die Verwendung in einer weißen LED, beruhend auf der Kombination einer blauen LED mit dem Tb-Granat-haltigen Leuchtstoff, der durch Absorption eines Teils der Emission der blauen LED angeregt wird und dessen Emission die übrig bleibende Strahlung der LED zu weißem Licht ergänzt.

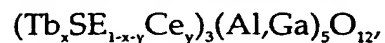
Als blaue LED eignet sich insbesondere eine Ga(In)N-LED, aber auch jeder andere Weg zur Erzeugung einer blauen LED mit einer Emission im Bereich 420 bis 490 nm. Insbesondere wird als hauptsächlicher Emissionsbereich 430 bis 470 nm empfohlen, da dann die Effizienz am höchsten ist.

Durch die Wahl von Art und Menge an Seltenerdmetallen ist eine Feineinstellung der Lage der Absorptions- und der Emissionsbande möglich, ähnlich wie dies für andere Leuchtstoffe des Typs YAG:Ce aus der Literatur bekannt ist. In Verbindung mit Leuchtdioden eignet sich vor allem ein Bereich für x, der zwischen  $0,25 \leq x \leq 0,5$  liegt.

Der besonders bevorzugte Bereich von y liegt bei  $0,02 < y < 0,06$ .

Der erfindungsgemäße Leuchtstoff eignet sich auch zur Kombination mit anderen Leuchtstoffen.

Gute Eignung als Leuchtstoff zeigt ein Granat der Struktur



wobei SE = Y, Gd, La und/oder Lu;  
 $0 \leq x \leq 0,02$ , insbesondere  $x = 0,01$ ;  
 $0 < y < 0,1$  gilt. Häufig liegt y im Bereich 0,01 bis 0,05.

Generell dienen kleinere Mengen an Tb im Wirtsgitter vor allem dazu, die Eigenschaften bekannter Cer-aktivierter Leuchtstoffe zu verbessern, während die Zugabe

größerer Mengen an Tb gezielt vor allem dafür eingesetzt werden kann, die Wellenlänge der Emission bekannter Cer-aktivierter Leuchtstoffe zu verschieben. Daher eignet sich ein hoher Anteil Tb besonders gut für weiße LED mit niedriger Farbtemperatur unter 5000 K.

### Figuren

- 5 Im folgenden soll die Erfindung anhand mehrerer Ausführungsbeispiele näher erläutert werden. Es zeigen:

- Figur 1 ein Emissionsspektrum eines ersten Tb-Granat-Leuchtstoffs;
- Figur 2 das Remissionsspektrum dieses Tb-Granat-Leuchtstoffs;
- Figur 3 Emissionsspektren weiterer Tb-Granat-Leuchtstoffe;
- 10 Figur 4 Remissionsspektren der Tb-Granat-Leuchtstoffe aus Figur 3;
- Figur 5 Emissionsspektren weiterer Tb-Granat-Leuchtstoffe;
- Figur 6 Remissionsspektren der Tb-Granat-Leuchtstoffe aus Figur 5;
- Figur 7 ein Emissionsspektrum einer weißen LED mit Tb-Granat-Leuchtstoff.

### Beschreibung mehrerer Ausführungsbeispiele

#### Ausführungsbeispiel Nr. 1:

- 15 Die Komponenten

	9,82 g	Yttriumoxid $Y_2O_3$
	2,07 g	Ceroxid $CeO_2$
	37,57 g	Terbiumoxid $Tb_4O_7$
	26,41 g	Aluminiumoxid $Al_2O_3$
20	0,15 g	Bariumfluorid $BaF_2$
	0,077 g	Borsäure $H_3BO_3$

werden vermischt und in einer 250-ml-Polyethylen-Weithalsflasche mit 150 g Aluminiumoxidkugeln von 10 mm Durchmesser zwei Stunden lang zusammen vermahlen.

Dabei dienen Bariumfluorid und Borsäure als Flußmittel. Die Mischung wird in einem bedeckten Korundtiegel für drei Std. bei 1550 °C in Formiergas (Stickstoff mit 2,3 Vol-% Wasserstoff) geglüht. Das Glühgut wird in einer automatischen Mörsermühle gemahlen und durch ein Sieb von 53 µm Maschenweite gesiebt. Anschließend erfolgt eine zweite Glühung für drei Std. bei 1500 °C in Formiergas (Stickstoff mit 0,5 Vol-% Wasserstoff). Danach wird wie nach der ersten Glühung gemahlen und gesiebt. Der erhaltene Leuchtstoff entspricht der Zusammensetzung  $(Y_{0,29}Tb_{0,67}Ce_{0,04})_3Al_5O_{12}$ . Er weist eine kräftig gelbe Körperfarbe auf. Ein Emissionsspektrum dieses Leuchtstoffs bei Anregung mit 430 nm und ein Remissionsspektrum des Leuchtstoffs zwischen 300 und 800 nm sind in Figur 1 und 2 wiedergegeben.

#### Ausführungsbeispiel Nr. 2:

##### Die Komponenten

	43,07 g	Terbiumoxid $Tb_4O_7$
15	1,65 g	Ceroxid $CeO_2$
	21,13 g	Aluminiumoxid $Al_2O_3$
	0,12 g	Bariumfluorid $BaF_2$
	0,062 g	Borsäure $H_3BO_3$

werden wie unter Beispiel Nr. 1 beschrieben innig gemischt. Zwei Glühungen und die weitere Aufarbeitung der Glühprodukte erfolgen wie unter Beispiel 1 beschrieben. Der erhaltene Leuchtstoff entspricht der gesamten Zusammensetzung  $(Tb_{0,96}Ce_{0,04})_3Al_5O_{12}$  oder in der das Wirtsgitter verdeutlichenden Darstellung  $Tb_3Al_5O_{12}:Ce$ . Er weist eine kräftig gelbe Körperfarbe auf. Das Röntgenbeugungsdiagramm zeigt, dass eine kubische Granatphase vorliegt. Das Emissionsspektrum und Remissionsspektrum dieses Leuchtstoffs ist in Figur 3 bzw. 4 gezeigt.

#### Ausführungsbeispiel Nr. 3:

- 6 -

## Die Komponenten

	32,18 g	Yttriumoxid $Y_2O_3$
	0,56 g	Terbiumoxid $Tb_4O_7$
	2,07 g	Ceroxid $CeO_2$
5	26,41 g	Aluminiumoxid $Al_2O_3$
	0,077 g	Borsäure $H_3BO_3$

werden wie unter Beispiel Nr. 1 beschrieben innig gemischt. Zwei Glühungen und Aufarbeitung der Glühprodukte erfolgen wie unter Beispiel Nr. 1 beschrieben. Der erhaltene Leuchtstoff entspricht der Zusammensetzung  
 10  $(Y_{0,95}Tb_{0,01}Ce_{0,04})_3Al_5O_{12}$ . Er weist eine kräftig gelbe Körperfarbe auf. Das Emissionsspektrum und Remissionsspektrum dieses Leuchtstoffs ist in Figur 3 bzw. 4 gezeigt.

Ausführungsbeispiel Nr. 4:

## Die Komponenten

15	26,76 g	Yttriumoxid $Y_2O_3$
	9,53 g	Terbiumoxid $Tb_4O_7$
	2,07 g	Ceroxid $CeO_2$
	26,41 g	Aluminiumoxid $Al_2O_3$
	0,149 g	Bariumfluorid $BaF_2$
20	0,077 g	Borsäure $H_3BO_3$

werden wie unter Beispiel Nr. 1 beschrieben innig gemischt. Zwei Glühungen und Aufarbeitung der Glühprodukte erfolgen wie unter Beispiel Nr. 1



beschrieben. Der erhaltene Leuchtstoff entspricht der Zusammensetzung  $(Y_{0.79}Tb_{0.17}Ce_{0.04})_3Al_5O_{12}$ . Er weist eine kräftig gelbe Körperfarbe auf. Das Emissionsspektrum und Remissionsspektrum dieses Leuchtstoffs ist in Figur 3 bzw. 4 gezeigt.

#### 5 Ausführungsbeispiel Nr. 5

Die Komponenten

	30,82 g	Yttriumoxid $Y_2O_3$
	0.56 g	Terbiumoxid $Tb_4O_7$
	4,13 g	Ceroxid $CeO_2$
10	26,41 g	Aluminiumoxid $Al_2O_3$
	0,149 g	Bariumfluorid $BaF_2$
	0,077 g	Borsäure $H_3BO_3$

werden wie unter Beispiel Nr. 1 beschrieben innig gemischt. Zwei Glühungen und Aufarbeitung der Glühprodukte erfolgen wie unter Beispiel Nr. 1  
 15 beschrieben. Der erhaltene Leuchtstoff entspricht der Zusammensetzung  $(Y_{0.91}Tb_{0.01}Ce_{0.08})_3Al_5O_{12}$ . Er weist eine kräftig gelbe Körperfarbe auf.

#### Ausführungsbeispiel Nr. 6:

Die Komponenten

	43,07 g	Terbiumoxid $Tb_4O_7$
20	1,65 g	Ceroxid $CeO_2$
	21,13 g	Aluminiumoxid $Al_2O_3$
	0,062 g	Borsäure $H_3BO_3$

- 8 -

werden wie unter Beispiel Nr. 1 beschrieben innig gemischt. Zwei Glühungen und Aufarbeitung der Glühprodukte erfolgen wie unter Beispiel 1 beschrieben, jedoch ist die Glühtemperatur bei den beiden Glühungen jeweils 50 °C niedriger. Der erhaltene Leuchtstoff entspricht der Zusammensetzung  
 5  $(\text{Tb}_{0,96}\text{Ce}_{0,04})_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ . Er weist eine kräftig gelbe Körperfarbe auf. Das Emissionsspektrum und Remissionsspektrum dieses Leuchtstoffs ist in Figur 5 bzw. 6 gezeigt.

#### Ausführungsbeispiel Nr. 7:

##### Die Komponenten

10	43,07 g	Terbiumoxid $\text{Tb}_2\text{O}_3$
	1,65 g	Ceroxid $\text{CeO}_2$
	17,05 g	Aluminiumoxid $\text{Al}_2\text{O}_3$
	7,50 g	Galliumoxid $\text{Ga}_2\text{O}_3$
	0,062 g	Borsäure $\text{H}_3\text{BO}_3$

15 werden wie unter Beispiel Nr. 1 beschrieben innig gemischt. Zwei Glühungen und Aufarbeitung der Glühprodukte erfolgen wie unter Beispiel 1 beschrieben, jedoch ist die Glühtemperatur bei beiden Glühungen jeweils 50 °C niedriger. Der erhaltene Leuchtstoff entspricht der Zusammensetzung  
 $(\text{Tb}_{0,96}\text{Ce}_{0,04})_3\text{Al}_4\text{GaO}_{12}$ . Er weist eine kräftig gelbe Körperfarbe auf. Das Emissionsspektrum und Remissionsspektrum dieses Leuchtstoffs ist in Figur 5  
 20 bzw. 6 gezeigt.

#### Ausführungsbeispiel Nr. 8:

##### Die Komponenten

43,07 g	Terbiumoxid $\text{Tb}_2\text{O}_3$
---------	-------------------------------------

- 9 -

1,65 g	Ceroxid $\text{CeO}_2$
12,97 g	Aluminiumoxid $\text{Al}_2\text{O}_3$
15,00 g	Galliumoxid $\text{Ga}_2\text{O}_3$
0,062 g	Borsäure $\text{H}_3\text{BO}_3$

- 5 werden wie unter Beispiel Nr. 1 beschrieben innig gemischt. Zwei Glühungen und Aufarbeitung der Glühprodukte erfolgen wie unter Beispiel 1 beschrieben, jedoch ist die Glühtemperatur bei beiden Glühungen jeweils 50 °C niedriger. Der erhaltene Leuchtstoff entspricht der Zusammensetzung  $(\text{Tb}_{0,96}\text{Ce}_{0,04})_3\text{Al}_3\text{Ga}_2\text{O}_{12}$ . Er weist eine gelbe Körperfarbe auf. Das Emissions-
- 10 spektrum und Remissionsspektrum dieses Leuchtstoffs ist in Figur 5 bzw. 6 gezeigt.

#### Ausführungsbeispiel Nr. 9

Die Komponenten

	4,88 kg	Yttriumoxid $\text{Y}_2\text{O}_3$
15	7,05 kg	Gadoliniumoxid $\text{Gd}_2\text{O}_3$
	161,6 g	Terbiumoxid $\text{Tb}_4\text{O}_7$
	595 g	Ceroxid $\text{CeO}_2$
	7,34 kg	Aluminiumoxid $\text{Al}_2\text{O}_3$
	5,50 g	Borsäure $\text{H}_3\text{BO}_3$

- 20 werden in einem 60 l Polyethylenfass 24 Stunden gemischt. Die Mischung wird in Glühtiegel aus Aluminiumoxid von ca. 1 l Fassungsvermögen eingefüllt und in einem Durchschubofen 6 Stunden bei 1550 °C in Formiergas ge-  
glüht. Das geglühte Material wird in einer automatischen Mörsermühle ge-

mahlen und anschließend fein gesiebt. Der erhaltene Leuchtstoff hat die Zusammensetzung  $(Y_{0.50}Gd_{0.45}Tb_{0.01}Ce_{0.04})_3Al_5O_{12}$ . Er weist eine kräftig gelbe Körperfarbe auf. Das Emissionsspektrum und Remissionsspektrum dieses Leuchtstoffs ist in Figur 3 bzw. 4 gezeigt.

5 Ausführungsbeispiel 10 (LED):

- Beim Einsatz dieser Leuchtstoffe in einer weißen LED zusammen mit GaInN wird ein Aufbau ähnlich wie in WO 97/50132 beschrieben verwendet. Beispielweise werden gleiche Teile von Leuchtstoff nach Beispiel 1 und von Leuchtstoff nach Beispiel 4 in Epoxidharz dispergiert und mit dieser Harz-
- 10 mischung eine LED mit einem Emissionsmaximum von etwa 450 nm (blau) umhüllt. Das Emissionsspektrum einer so erhaltenen weißen LED ist in Figur 7 dargestellt. Die Mischung der blauen LED-Strahlung mit der gelben Leuchtstoff-Emission ergibt in diesem Fall einen Farbort von  $x = 0,359$  /  $y = 0,350$ , entsprechend weißem Licht der Farbtemperatur 4500 K.
- 15 Die oben beschriebenen Leuchtstoffe weisen im allgemeinen gelbe Körperfarbe auf. Sie emittieren im gelben Spektralbereich. Bei Zugabe oder alleiniger Verwendung von Ga statt Al verschiebt sich die Emission mehr in Richtung grün, so dass sich insbesondere auch höhere Farbtemperaturen realisieren lassen. Insbesondere können Ga-haltige (oder Ga,Al-haltige) Tb-Granate
- 20 und rein Al-haltige Tb-Granate gemischt verwendet werden um eine Anpassung an gewünschte Farbörter vornehmen zu können.

- 11 -

# Ansprüche

1. Leuchtstoff für die Anregung durch eine blau emittierende Strahlungsquelle, deren Emission im kurzwelligen optischen Spektralbereich von 420 bis 490 nm liegt, mit einer Granatstruktur  $A_3B_5O_{12}$ , wobei der Leuchtstoff mit Ce aktiviert ist entsprechend der Darstellung  $A_3B_5O_{12}:Ce$ , wobei die zweite Komponente B mindestens eines der Elemente Al und Ga repräsentiert, dadurch gekennzeichnet, daß die erste Komponente A Terbium enthält.
2. Leuchtstoff nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die erste Komponente A überwiegend oder allein durch Terbium gebildet ist.
3. Leuchtstoff nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß der Leuchtstoff durch eine Strahlung im Bereich 430 bis 470 nm, anregbar ist.
4. Leuchtstoff nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die erste Komponente neben Tb Anteile von Y, Gd, La u/o Lu verwendet.
5. Leuchtstoff nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß ein Granat der Struktur  $(Tb_{1-x-y}SE_xCe_y)_3(Al,Ga)_5O_{12}$  verwendet, wobei  
 $SE = Y, Gd, La \text{ und/oder } Lu;$   
 $0 \leq x \leq 0,5-y;$   
 $0 < y < 0,1$  gilt.
6. Leuchtstoff nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die zweite Komponente B zusätzlich In enthält.
7. Verwendung eines Leuchtstoffs gemäß einem der vorhergehenden Ansprüche zur Anregung durch eine im Blauen zwischen 420 und 490 nm emittierenden Lichtquelle.
8. Lichtquelle, die primär Strahlung im kurzwelligen Bereich des optischen Spektralbereichs zwischen 420 und 490 nm emittiert, wobei diese Strahlung teilweise oder vollständig mittels eines Leuchtstoffs nach einem der vorhergehenden Ansprüche 1 bis 6 in längerwellige Strahlung konvertiert wird.

9. Lichtquelle nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, daß die primär emittierte Strahlung im Wellenlängenbereich 430 bis 470 nm liegt.
10. Lichtquelle nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, daß als primäre Strahlungsquelle eine blau emittierende Leuchtdiode, insbesondere auf Basis von Ga(In)N, verwendet wird.
- 5 11. Verfahren zur Herstellung eines Leuchtstoffs gemäß einem der Ansprüche 1 bis 6, gekennzeichnet durch folgende Verfahrensschritte:
  - a. Vermahlen der Oxide und Zugabe eines Flußmittels;
  - b. Erstes Glühen in Formiergas;
  - 10 c. Mahlen und Sieben;
  - d. Zweites Glühen.

Emissionsspektrum des Leuchtstoffs nach Ausführungsbeispiel 1 bei Anregung mit 430 nm

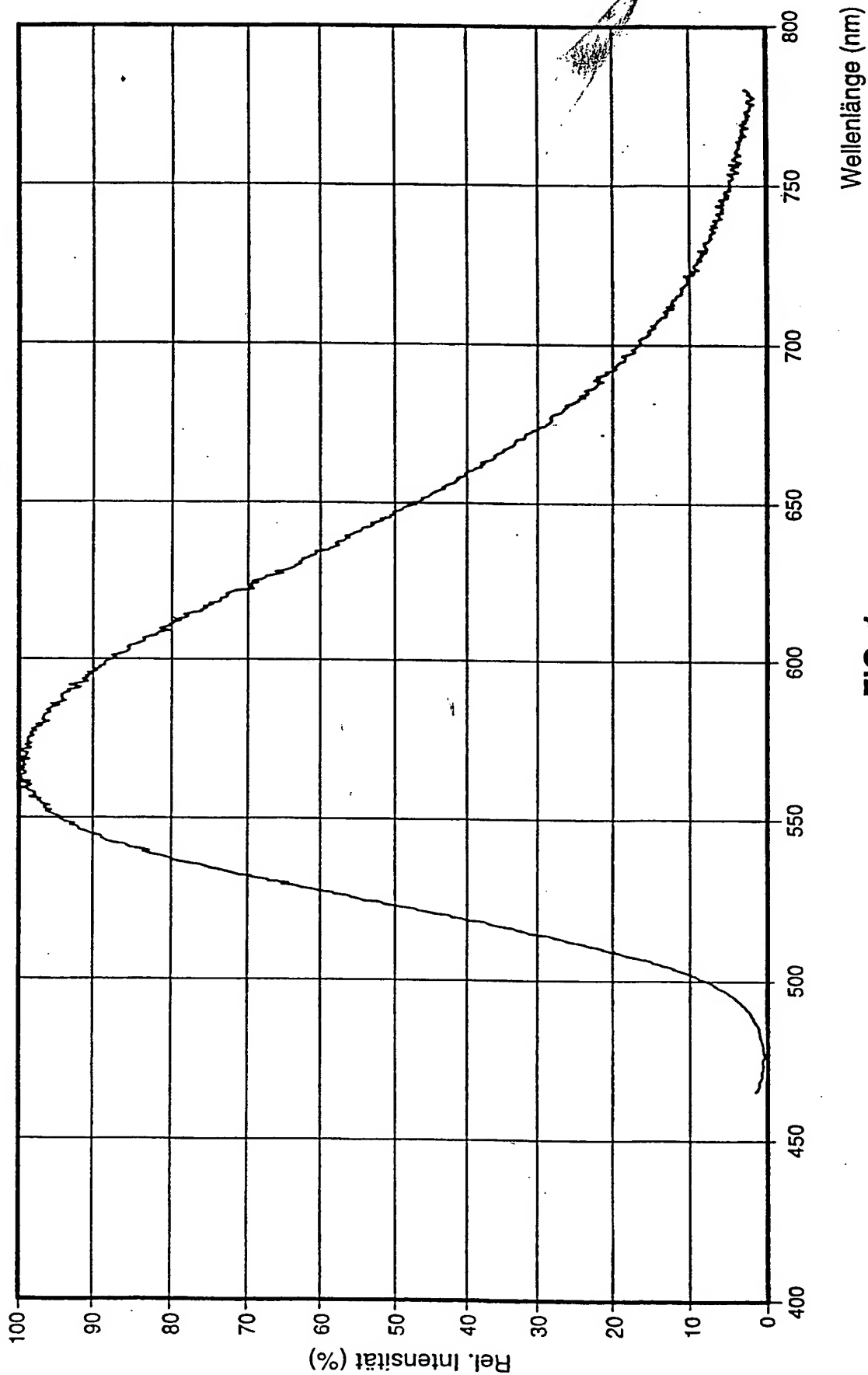


FIG. 1

Remissionsspektrum des Leuchtstoffs nach Ausführungsbeispiel 1

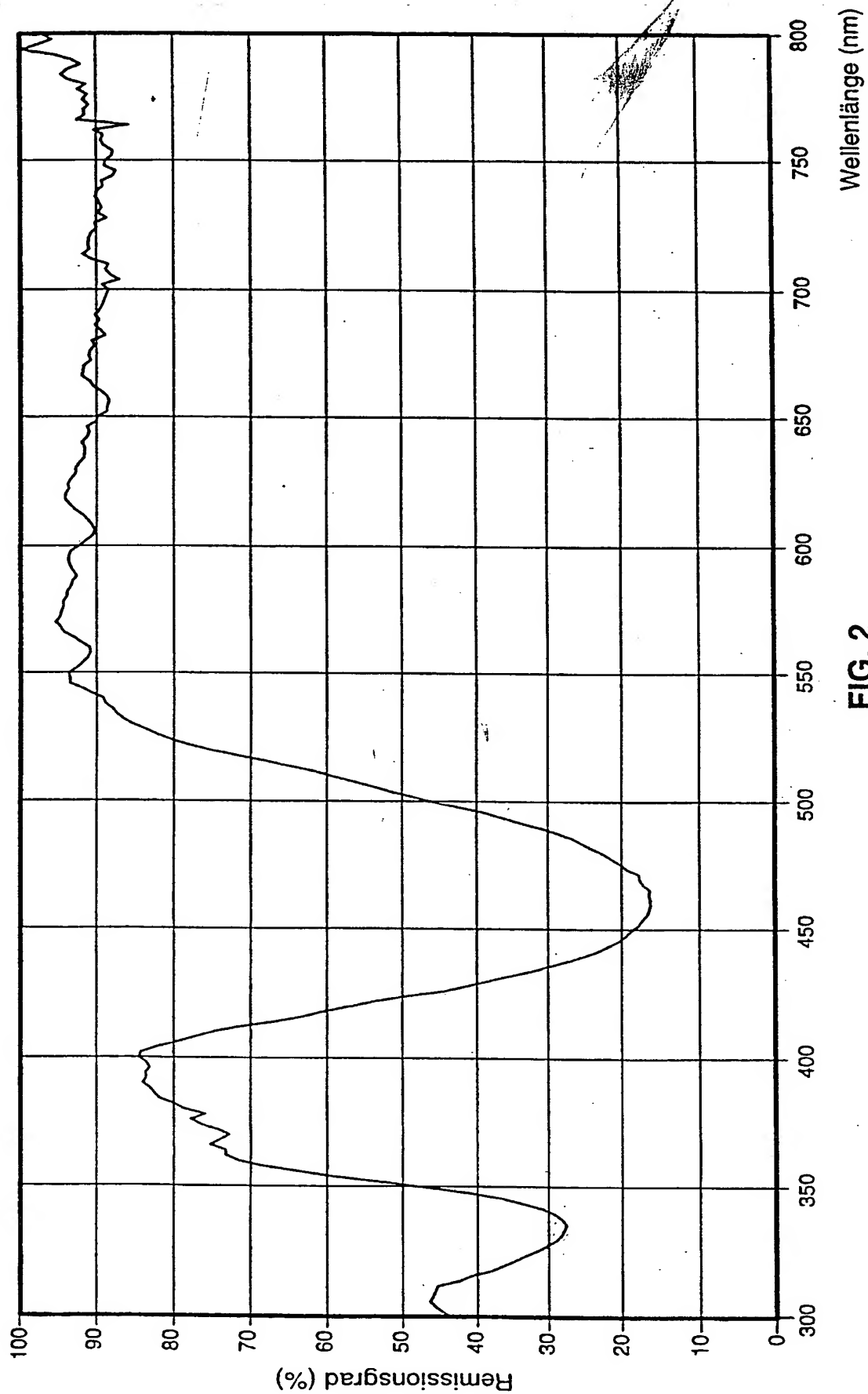


FIG. 2



## Emissionsspektren (bei 460 nm Anregung)

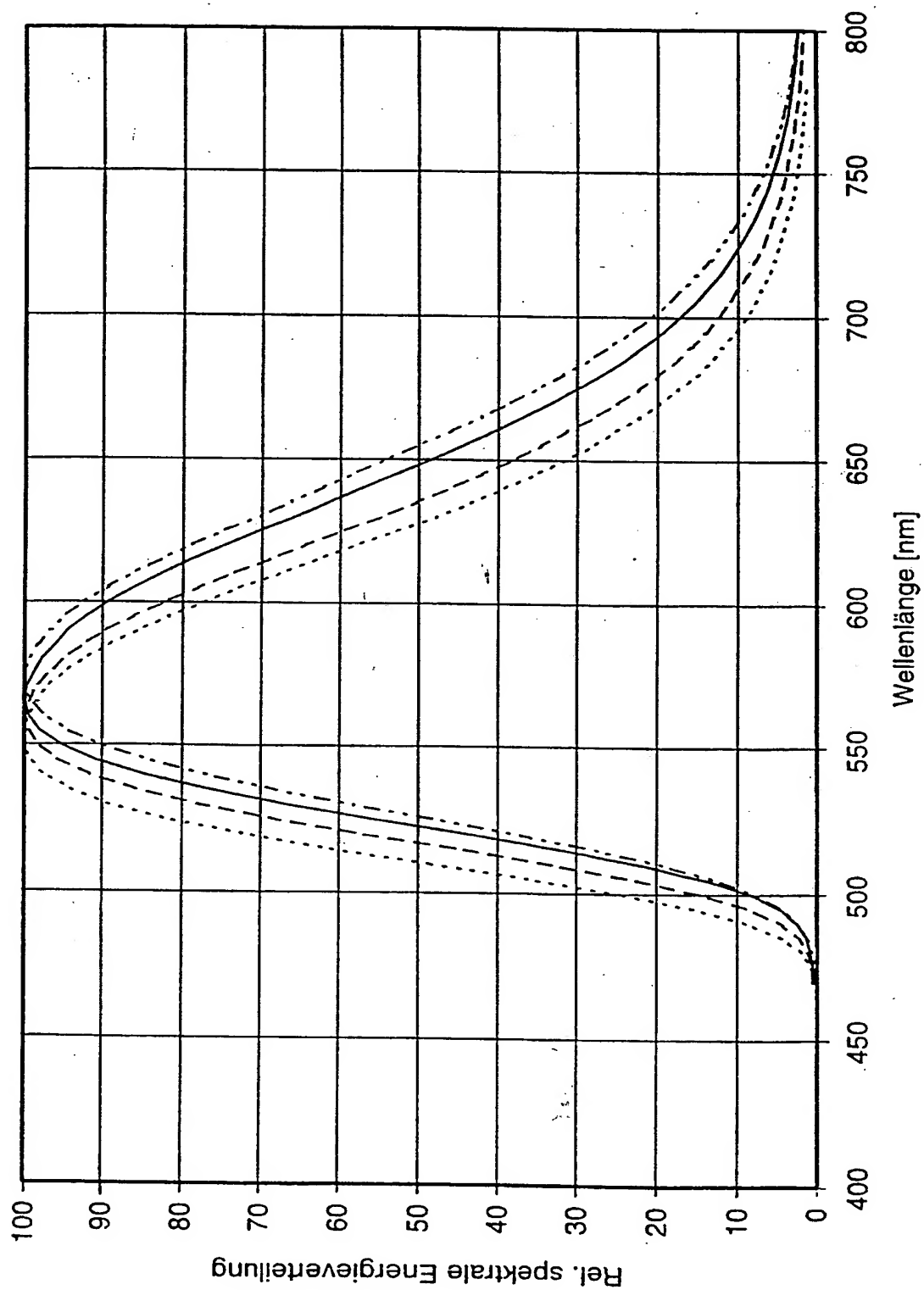


FIG. 3

## Remissionsspektren

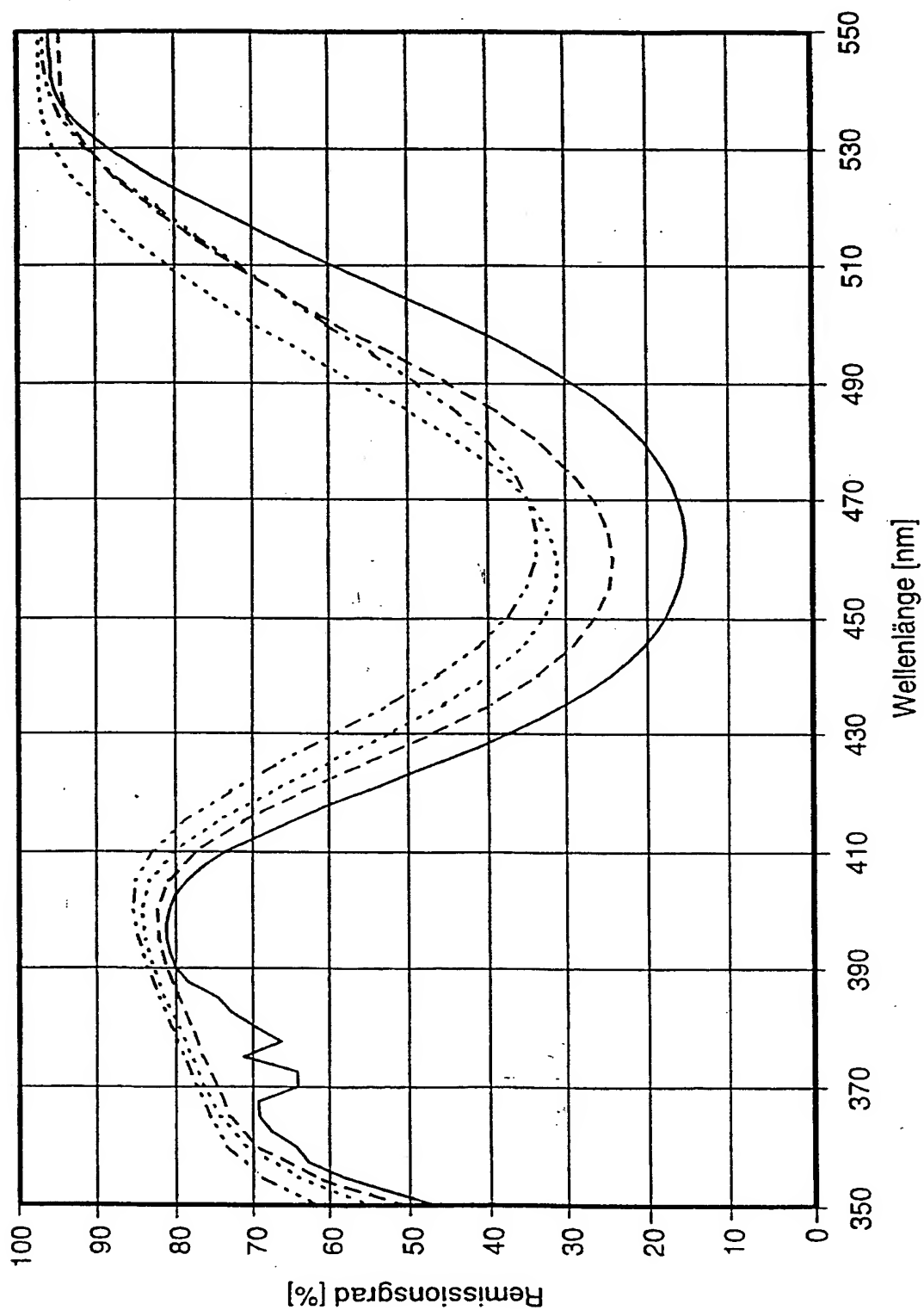


FIG. 4

Emissionsspektren (bei 460 nm Anregung)

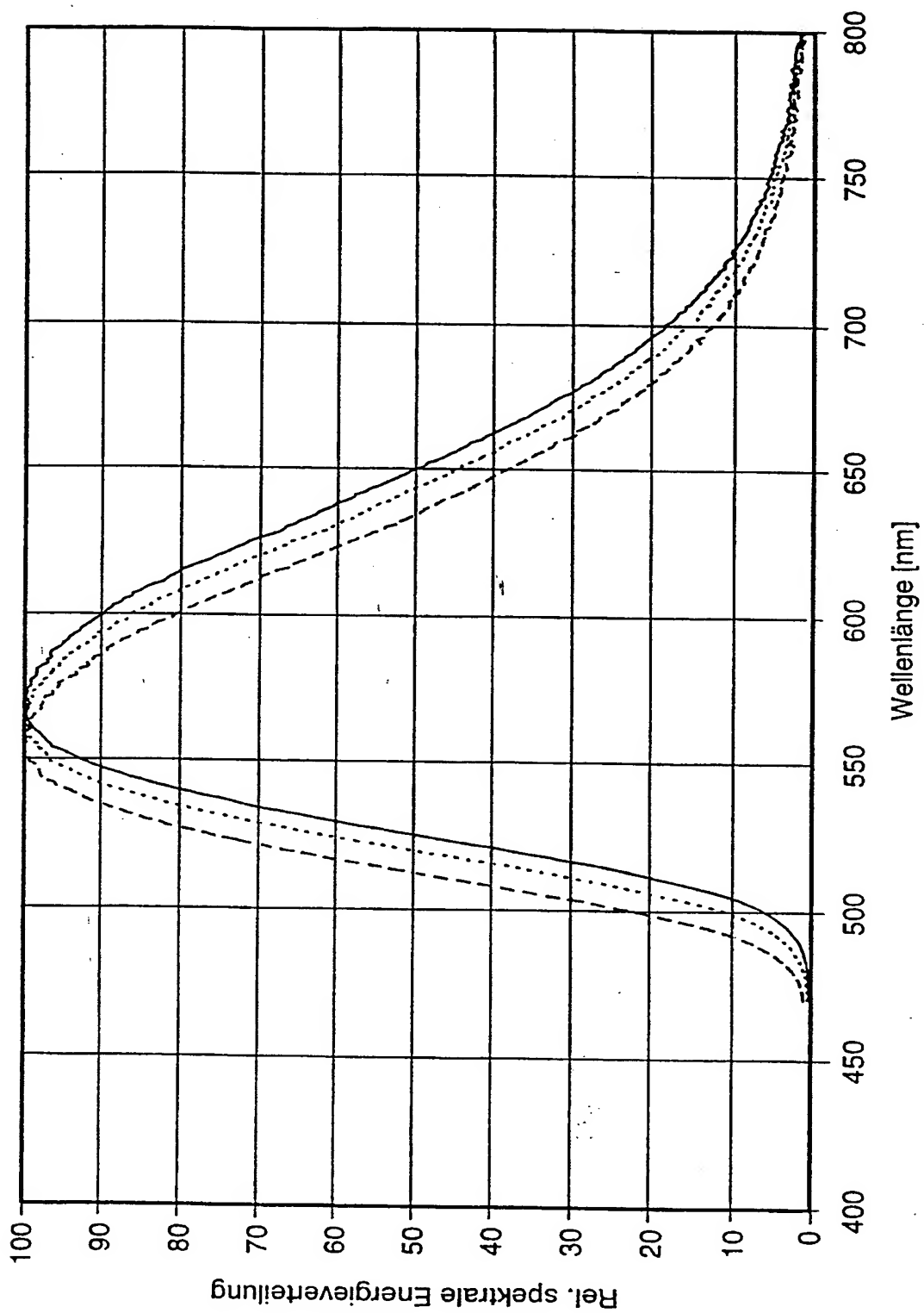
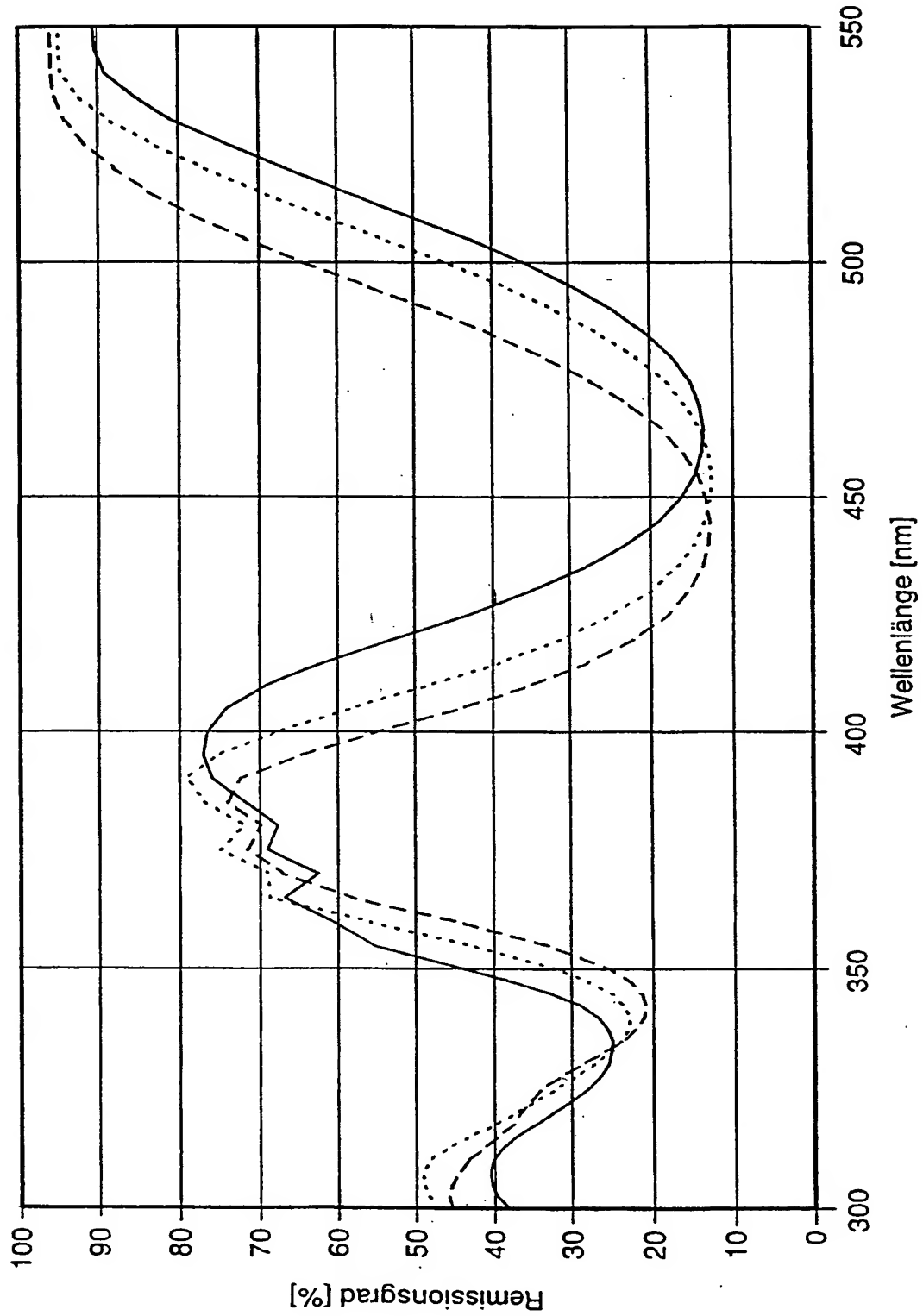


FIG. 5

Remissionsspektren



— Beispiel 6  
 ..... Beispiel 7  
 --- Beispiel 8

FIG. 6

Emissionsspektrum einer weissen LED

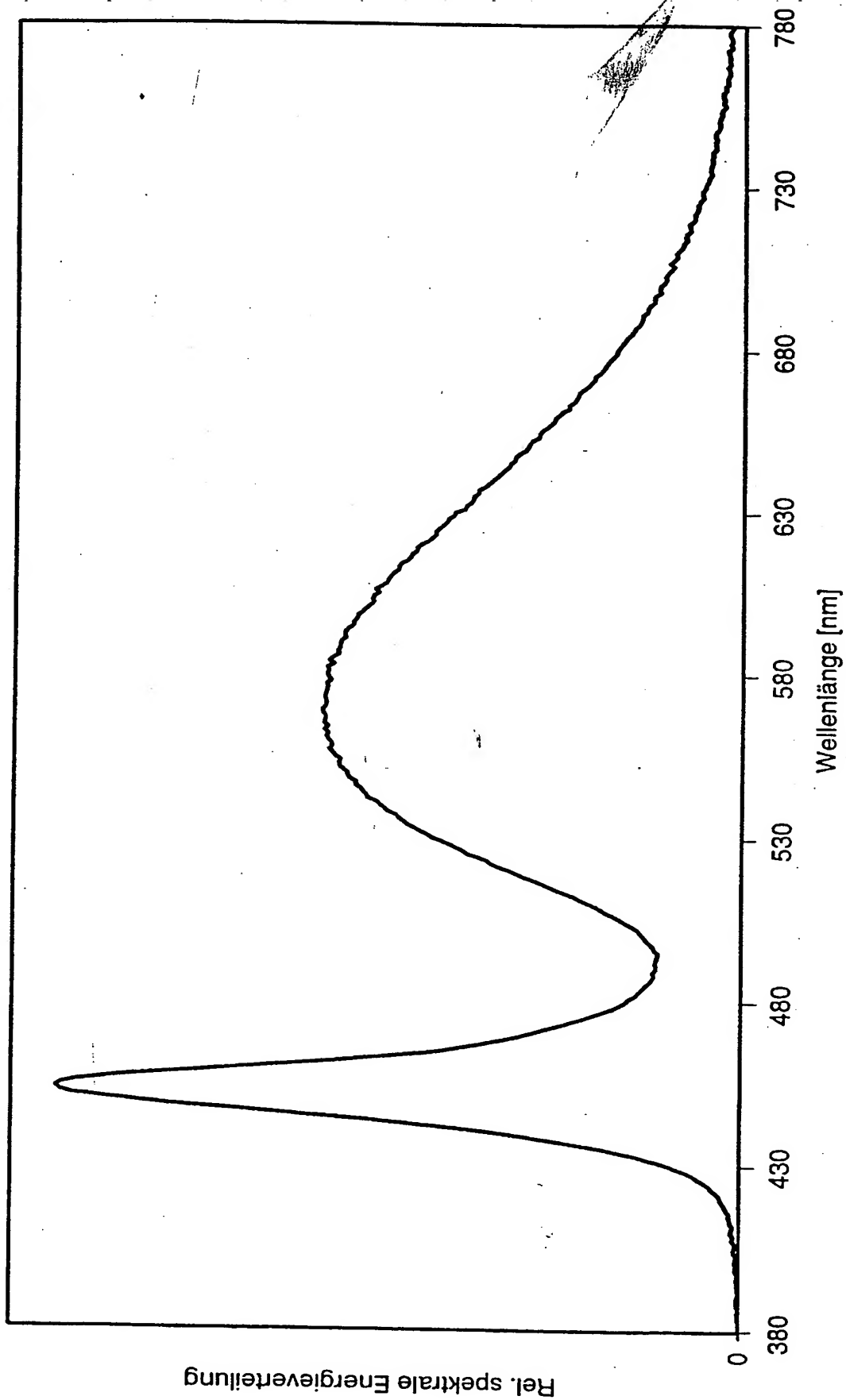


FIG. 7

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/DE 00/02241

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 H05B33/14 H01L33/00 C09K11/80 C09K11/78

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C09K H05B H01L

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ, INSPEC, IBM-TDB, CHEM ABS Data

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP 0 142 931 A (AMERICAN TELEPHONE & TELEGRAPH) 29 May 1985 (1985-05-29) claims 1-10	1,4-6,8, 9,11
A	GB 2 000 173 A (PHILIPS NV) 4 January 1979 (1979-01-04) claims 1-11	1,4,5,8
A,P	DATABASE WPI Section Ch, Week 200046 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class L03, AN 2000-506318 XP002150848 & CN 1 254 747 A (CHANGCHUN PHYSICS INST CHINESE ACAD SCI), 31 May 2000 (2000-05-31) abstract	1,4,5



Further documents are listed in the continuation of box C.



Patent family members are listed in annex.

### \* Special categories of cited documents :

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

9 November 2000

Date of mailing of the international search report

16/11/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Drouot-Onillon, M-C

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

Int'l. Application No

PCT/DE 00/02241

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0142931	A	29-05-1985	US 4550256 A DE 3461826 D JP 60144381 A	29-10-1985 05-02-1987 30-07-1985
GB 2000173	A	04-01-1979	NL 7707008 A AU 3737678 A BE 868362 A BR 7803927 A CA 1110928 A DE 2826788 A ES 471027 A FR 2395593 A IT 1096774 B JP 1273585 C JP 54011085 A JP 59050195 B	28-12-1978 03-01-1980 22-12-1978 17-04-1979 20-10-1981 18-01-1979 16-02-1979 19-01-1979 26-08-1985 11-07-1985 26-01-1979 06-12-1984
CN 1254747	A	31-05-2000	NONE	

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Inter. Anmeld. Aktenzeichen

PCT/DE 00/02241

## A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 H05B33/14 H01L33/00 C09K11/80 C09K11/78

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C09K H05B H01L

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ, INSPEC, IBM-TDB, CHEM ABS Data

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	EP 0 142 931 A (AMERICAN TELEPHONE & TELEGRAPH) 29. Mai 1985 (1985-05-29) Ansprüche 1-10	1,4-6,8, 9,11
A	GB 2 000 173 A (PHILIPS NV) 4. Januar 1979 (1979-01-04) Ansprüche 1-11	1,4,5,8
A,P	DATABASE WPI Section Ch, Week 200046 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class L03, AN 2000-506318 XP002150848 & CN 1 254 747 A (CHANGCHUN PHYSICS INST CHINESE ACAD SCI), 31. Mai 2000 (2000-05-31) Zusammenfassung	1,4,5



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfindnerischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfindnerischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

9. November 2000

Abschließdatum des internationalen Recherchenberichts

16/11/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Drouot-Onillon, M-C



# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 00/02241

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 0142931 A	29-05-1985	US 4550256 A DE 3461826 D JP 60144381 A	29-10-1985 05-02-1987 30-07-1985
GB 2000173 A	04-01-1979	NL 7707008 A AU 3737678 A BE 868362 A BR 7803927 A CA 1110928 A DE 2826788 A ES 471027 A FR 2395593 A IT 1096774 B JP 1273585 C JP 54011085 A JP 59050195 B	28-12-1978 03-01-1980 22-12-1978 17-04-1979 20-10-1981 18-01-1979 16-02-1979 19-01-1979 26-08-1985 11-07-1985 26-01-1979 06-12-1984
CN 1254747 A	31-05-2000	KEINE	

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☒ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**